

PCT

WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM  
Internationales Büro



INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE  
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation <sup>7</sup> : C08L 67/02 // (C08L 67/02, 51:04, 25:12)		A1	(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 00/20500
			(43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 13. April 2000 (13.04.00)
(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP99/07208		(81) Bestimmungsstaaten: AL, AU, BG, BR, BY, CA, CN, CZ, GE, HU, ID, IL, IN, JP, KR, KZ, LT, LV, MK, MX, NO, NZ, PL, RO, RU, SG, SI, SK, TR, UA, US, ZA, curasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).	
(22) Internationales Anmeldedatum: 29. September 1999 (29.09.99)			
(30) Prioritätsdaten: 198 45 317.5 1. Oktober 1998 (01.10.98) DE			
(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): BASF AKTIENGESellschaft [DE/DE]; D-67056 Ludwigshafen (DE).		Veröffentlicht Mit internationalem Recherchenbericht.	
(72) Erfinder; und			
(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): FISCHER, Michael [DE/DE]; Pater-Baroffio-Weg 29, D-67071 Ludwigshafen (DE). WEBER, Martin [DE/DE]; Dienesfelder Strasse 26, D-67487 Maikammer (DE). GINSS, Christophe [FR/FR]; 13, rue Principale, F-67120 Wolxheim (FR). BERZ, Stephan [DE/DE]; Schwarzbachstrasse 7b, D-60529 Frankfurt am Main (DE). KRESS, Norbert [DE/DE]; Weinbrennerstrasse 8, D-67069 Ludwigshafen (DE).			
(74) Anwalt: ISENBRUCK, Günter; Bardehle, Pagenberg, Dost, Altenburg, Geissler, Isenbruck, Theodor-Heuss-Anlage 12, D-68165 Mannheim (DE).			
(54) Title: THERMOPLASTIC MOULDING MATERIALS FOR INTERNAL APPLICATIONS IN A MOTOR VEHICLE			
(54) Bezeichnung: THERMOPLASTISCHE POLYESTERFORMMASSEN FÜR KRAFTFAHRZEUG-INNENANWENDUNGEN			
(57) Abstract			
<p>The invention relates to a fiber-reinforced thermoplastic moulding material containing the following ingredients in relation to the sum of ingredients A-D and optionally E and F, representing a total of 100 wt. %: d) 10-97 wt. % of at least one aromatic polyester as ingredient A; e) 1-50 wt. % of at least one particle-shaped grafted copolymer with a soft phase glass transition temperature that is lower than 0 °C and an average particle size of 50-1000 nm as ingredient B; f) 1-50 wt. % of at least one copolymer made of monomers c1) 50-90 wt. % of at least one vinyl aromatic monomer as ingredient C1 and c2) 10-25 wt. % acrylonitrile and/or methacrylonitrile as ingredient C2, as ingredient C; 1-50 wt. % glass fibers as ingredient D; f) 0-25 wt. % other ingredients that are compatible, can be mixed in a homogenous manner with ingredients A and/or C and can be dispersed therein, as ingredient E; f) 0-10 wt. % usual additives such as UV stabilizers, oxidation retarders, lubricating agents and release agents as ingredient F. The invention also relates to moulded parts made from said moulding materials and used in the interiors of motor vehicles. The invention further relates to the use of moulding materials in the production of moulded parts.</p>			
(57) Zusammenfassung			
<p>Gegenstand der Erfindung ist eine glasfaserverstärkte thermoplastische Formmasse, enthaltend, bezogen auf die Summe der Komponenten A bis D und gegebenenfalls E und F, die insgesamt 100 Gew.-% ergibt; d) 10 bis 97 Gew.-% mindestens eines aromatischen Polyesters als Komponente A; e) 1 bis 50 Gew.-% mindestens eines teilchenförmigen Pfropfcopolymerisats mit einer Glasübergangstemperatur der Weichphase unterhalb von 0 °C und einer mittleren Teilchengröße von 50 bis 1000 nm als Komponente B; f) 1 bis 90 Gew.-% mindestens eines Copolymerisats aus den Monomeren c1) 50 bis 90 Gew.-% mindestens eines vinylaromatischen Monomeren als Komponente C1 und c2) 10 bis 25 Gew.-% Acrylnitril und/oder Methacrylnitril als Komponente C2, als Komponente C; d) 1 bis 50 Gew.-% Glasfasern als Komponente D; f) 0 bis 25 Gew.-% weitere, mit den Komponenten A und/oder C homogenen mischbare oder in diesen dispergierbare, verträgliche Polymere als Komponente E; f) 0 bis 10 Gew.-% übliche Zusatzstoffe wie UV-Stabilisatoren, Oxidationsverzögerer, Gleit- und Entformungsmittel als Komponente F. Gegenstand der Erfindung sind auch Formteile aus diesen Formmassen für den Innenraum von Kraftfahrzeugen sowie die Verwendung der Formmassen zur Herstellung der Formteile.</p>			

# **LEDIGLICH ZUR INFORMATION**

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidshan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland			TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	ML	Mali	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MN	Mongolei	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MR	Mauretanien	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MW	Malawi	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	MX	Mexiko	UZ	Usbekistan
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NE	Niger	VN	Vietnam
CG	Kongo	KE	Kenia	NL	Niederlande	YU	Jugoslawien
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NO	Norwegen	ZW	Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	NZ	Neuseeland		
CM	Kamerun			PL	Polen		
CN	China	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CU	Kuba	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CZ	Tschechische Republik	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
DE	Deutschland	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DK	Dänemark	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
EE	Estland	LR	Liberia	SG	Singapur		

---

5 THERMOPLASTISCHE POLYESTERFORMMASSEN FÜR KRAFTFAHRZEUG-INNENANWENDUNGEN

---

10

Die Erfindung betrifft glasfaserverstärkte thermoplastische Formmassen, Formteile daraus sowie die Verwendung der Formmassen zur Herstellung der Formteile.

15

Formteile aus polymeren Werkstoffen, die im Innenraum von Kraftfahrzeugen zur Anwendung kommen, müssen hohen Anforderungen bezüglich ihrer mechanischen Eigenschaften, ihrer Oberflächeneigenschaften, ihres Alterungsverhaltens sowie ihres Geruchsverhaltens genügen. Für die Herstellung von Formteilen für Kraftfahrzeug-Innenanwendungen werden bisher verschiedene polymere Werkstoffe verwendet.

20

Ein verwendeter Werkstoff ist glasfaserverstärktes ABS/PC (Polymer-Blend aus Acrylnitril/Butadien/Styrol-Copolymer und Polycarbonat). Dieser Werkstoff weist jedoch eine nur unzureichende UV-Beständigkeit, ein schlechtes Wärmealterungsverhalten (Zähigkeit und Bruchdehnung nach Wärmelagerung), ungünstige Oberflächeneigenschaften sowie insbesondere ein schlechtes Geruchsverhalten auf. Unter Geruchsverhalten wird die Neigung von Werkstoffen verstanden, nach einer Temperatur- und Klimalagerung von festgelegter Dauer flüchtige Bestandteile abzugeben, die einen wahrnehmbaren Geruch aufweisen.

30

Als weiterer Werkstoff kommt glasfaserverstärktes, zähmodifiziertes SMA (Styrol/Maleinsäureanhydrid-Copolymer) zum Einsatz. Auch SMA weist nur unzureichende Oberflächeneigenschaften, eine schlechte Wärmealterungsbeständigkeit sowie ein schlechtes Geruchsverhalten auf.

Die vorstehend genannten Werkstoffe weisen zudem eine nur schlechte Wärmeformbeständigkeit auf, die in einer nur geringen Vicat B-Erweichungstemperatur (Vicat B < 130°C) zum Ausdruck kommt. Eine gute Wärmeformbeständigkeit und Wärmealterungsbeständigkeit der eingesetzten Werkstoffe ist jedoch essentiell, da sich der Kraftfahrzeug-Innenraum, insbesondere unter Einwirkung von Sonnenstrahlung, erheblich aufheizen kann.

Die vorstehend genannten Nachteile konnten mit Polymerwerkstoffen auf der Basis von PBT/ASA/PSAN (Polymerblends aus Polybutylenterephthalat, Acrylnitril/Styrol/Acrylsäureester-Copolymer und Polystyrol/Acrylnitril-Copolymer) behoben werden. Solche Werkstoffe sind in DE-A 39 11 828 allgemein offenbart. Die Ausführungsbeispiele beziehen sich auf Formmassen mit einem hohen Acrylnitril-Anteil der PSAN-Copolymere. Formteile aus diesen Formmassen weisen jedoch ebenfalls ein schlechtes Emissionsverhalten auf.

Aufgabe der Erfindung ist es, für die Herstellung von Formteilen, die im Innenraum von Kraftfahrzeugen eingesetzt werden, geeignete Formmassen zur Verfügung zu stellen, die ein günstiges Eigenschaftsprofil hinsichtlich ihrer mechanischen, optischen und sensorischen Eigenschaften sowie insbesondere eine gute Wärmeformbeständigkeit, Wärmealterungsbeständigkeit und ein gutes Emissionsverhalten und/oder Geruchsverhalten aufweisen.

Gelöst wird die Aufgabe durch eine glasfaserverstärkte thermoplastische Formmasse, enthaltend, bezogen auf die Summe der Komponenten A bis D und gegebenenfalls E und F, die insgesamt 100 Gew.-% ergibt,

- a) 10 bis 97 Gew.-% mindestens eines aromatischen Polyesters als Komponente A,
- b) 1 bis 50 Gew.-% mindestens eines teilchenförmigen Pfropfcopolymerisats mit einer Glasübergangstemperatur der Weichphase unterhalb von 0°C und

einer mittleren Teilchengröße von 50 bis 1000 nm als Komponente B,

c) 1 bis 50 Gew.-% mindestens eines Copolymerisats aus den Monomeren

5 c1) 50 bis 90 Gew.-% mindestens eines vinylaromatischen Monomeren als  
Komponente C1 und

c2) 10 bis 25 Gew.-% Acrylnitril und/oder Methacrylnitril als  
Komponente C2,

10

als Komponente C,

d) 1 bis 50 Gew.-% Glasfasern als Komponente D,

15 e) 0 bis 25 Gew.-% weitere, mit den Komponenten A und/oder C homogen  
mischbare oder in diesen dispergierbare, verträgliche Polymere als Komponente  
E,

20 f) 0 bis 10 Gew.-% übliche Zusatzstoffe wie UV-Stabilisatoren, Ruß,  
Pigmente, Oxidationsverzögerer, Gleit- und Entformungsmittel als  
Komponente F.

25 Als Komponente A enthält die erfindungsgemäße Formmasse 10 bis 97 Gew.-%,  
bevorzugt 20 bis 75 Gew.-%, besonders bevorzugt 30 bis 60 Gew.-% eines  
aromatischen Polyesters. Die in den erfindungsgemäßen Formmassen enthaltenen  
Polyester sind an sich bekannt.

30 Die Herstellung der Polyester kann durch Reaktion von Terephthalsäure, deren  
Ester oder anderer esterbildender Derivate mit 1,4-Butandiol, 1,3-Propandiol bzw.  
1,2-Ethandiol in an sich bekannter Weise erfolgen.

Bis zu 20 mol-% der Terephthalsäure können durch andere Dicarbonsäuren ersetzt werden. Nur beispielsweise seien hier Naphthalindicarbonsäuren, Isophthalsäure, Adipinsäure, Azelainsäure, Sebacinsäure, Dodecandisäure und Cyclohexandicarbonsäuren, Mischungen dieser Carbonsäuren und esterbildende  
5 Derivate derselben genannt.

Auch bis zu 20 mol-% der Dihydroxyverbindungen 1,4-Butandiol, 1,3 Propandiol bzw. 1,2-Ethandiol können durch andere Dihydroxyverbindungen, z.B. 1,6-Hexandiol, 1,4-Hexandiol, 1,4-Cyclohexandiol, 1,4-Di(hydroxymethyl)cyclohexan,  
10 Bisphenol A, Neopentylglykol, Mischungen dieser Diole sowie esterbildende Derivate derselben ersetzt werden.

Bevorzugte aromatische Polyester sind Polyethylterephthalat (PET), Polytrimethylterephthalat (PTT) und insbesondere Polybutylterephthalat (PBT),  
15 die ausschließlich aus Terephthalsäure und den entsprechenden Diolen 1,2-Ethandiol, 1,3-Propandiol und 1,4-Butandiol gebildet sind. Die aromatischen Polyester können auch ganz oder teilweise in Form von Polyester-Recyclaten, wie PET-Mahlgut aus Flaschenmaterial oder aus Abfällen der Flaschenherstellung eingesetzt werden.

20

In einer besonders bevorzugten Ausführungsform besteht die Komponente A aus

a1) 60 bis 99 Gew.-%, bevorzugt 80 bis 95 Gew.-% Polybutylterephthalat  
und

25

a2) 1 bis 40 Gew.-%, bevorzugt 5 bis 20 Gew.-% Polyethylterephthalat.

Als Komponente B enthält die erfindungsgemäße Formmasse 1 bis 50 Gew.-%, bevorzugt 1 bis 25 Gew.-%, besonders bevorzugt 2 bis 15 Gew.-%, insbesondere 2  
30 bis 10 Gew.-% mindestens eines teilchenförmigen Pfropfcopolymerisats mit einer Glasübergangstemperatur der Weichphase unterhalb von 0°C und einer mittleren

Teilchengröße von 50 bis 1000 nm.

Vorzugsweise handelt es sich bei Komponente B um ein Pfropfcopolymerisat aus

5       b1) 50 bis 90 Gew.-% einer teilchenförmigen Pfropfgrundlage B1 mit einer  
Glasübergangstemperatur unterhalb 0°C und

b2) 10 bis 50 Gew.-% einer Pfropfaufgabe B2 aus den Monomeren

10       b21) 50 bis 90 Gew.-% eines vinylaromatischen Monomeren als  
Komponente B21 und

b22) 10 bis 49 Gew.-% Acrylnitril und/oder Methacrylnitril als  
Komponente B22.

15

Die teilchenförmige Pfropfgrundlage B1 kann aus 70 bis 100 Gew.-% eines  
konjugierten Diens und 0 bis 30 Gew.-% eines difunktionellen Monomeren mit zwei  
olefinischen, nicht konjugierten Doppelbindungen bestehen. Solche  
Pfropfgrundlagen werden beispielsweise bei ABS-Polymeren oder MBS-Polymeren  
20 als Komponente B eingesetzt.

Gemäß einer bevorzugten Ausführungsform der Erfindung besteht die Pfropf-  
grundlage B1 aus den Monomeren

25       b11) 75 bis 99,9 Gew.-% eines C<sub>1</sub>-C<sub>10</sub>-Alkylesters der Acrylsäure als  
Komponente B11,

b12) 0,1 bis 10 Gew.-% mindestens eines polyfunktionellen Monomeren  
mit mindestens zwei olefinischen, nicht konjugierten  
30 Doppelbindungen als Komponente B12 und

b13) 0 bis 24,9 Gew.-% eines oder mehrerer weiterer copolymerisierbarer Monomere als Komponente B13.

Bei der Pfpfgrundlage B1 handelt es sich um ein Elastomeres, welches eine Glasübergangstemperatur von bevorzugt unterhalb  $-20^{\circ}\text{C}$ , besonders bevorzugt unterhalb  $-30^{\circ}\text{C}$  aufweist.

Für die Herstellung des Elastomeren werden als Hauptmonomere B11 Ester der Acrylsäure mit 1 bis 10 C-Atomen, insbesondere 4 bis 8 C-Atomen in der Alkoholkomponente eingesetzt. Besonders bevorzugte Monomere B11 sind iso- und n-Butylacrylat sowie 2-Ethylhexylacrylat, von denen die beiden letztgenannten besonders bevorzugt sind.

Neben den Estern der Acrylsäure werden als vernetzendes Monomer B12 0,1 bis 10, bevorzugt 0,1 bis 5, besonders bevorzugt 1 bis 4 Gew.-% eines polyfunktionellen Monomeren mit mindestens zwei olefinischen, nicht konjugierten Doppelbindungen eingesetzt. Beispiele sind Divinylbenzol, Diallylfumarat, Diallylphthalat, Triallylcyanurat, Triallylisocyanurat, Tricyclodecenyacrylat und Dihydrodicyclopentadienyacrylat, von denen die beiden zuletzt genannten besonders bevorzugt sind.

Neben den Monomeren B11 und B12 können am Aufbau der Pfpfgrundlage B1 noch bis zu 24,9, vorzugsweise bis zu 20 Gew.-% weiterer copolymerisierbarer Monomere, vorzugsweise Butadien-1,3, Styrol,  $\alpha$ -Methylstyrol, Acrylnitril, Methacrylnitril und  $\text{C}_1$ - $\text{C}_8$ -Alkylester der Methacrylsäure oder Mischungen dieser Monomeren beteiligt sein. In einer besonders bevorzugten Ausführungsform enthält die Pfpfgrundlage B1 kein Butadien-1,3, insbesondere besteht die Pfpfgrundlage B1 ausschließlich aus den Komponenten B11 und B12.

Auf die Pfpfgrundlage B1 ist eine Pfpfauflage B2 aus den Monomeren



b21) 50 bis 90 Gew.-%, vorzugsweise 60 bis 90 Gew.-%, besonders bevorzugt 65 bis 80 Gew.-% eines vinylaromatischen Monomeren als Komponente B21 und

5        b22) 10 bis 50 Gew.-%, vorzugsweise 10 bis 40 Gew.-%, besonders bevorzugt 20 bis 35 Gew.-% Acrylnitril oder Methacrylnitril oder deren Mischungen

aufgefropft.

10

Beispiele für vinylaromatische Monomere sind unsubstituiertes Styrol und substituierte Styrole wie  $\alpha$ -Methylstyrol, p-Chlorstyrol und p-Chlor- $\alpha$ -Methylstyrol. Bevorzug sind unsubstituiertes Styrol und  $\alpha$ -Methylstyrol, besonders bevorzugt ist unsubstituiertes Styrol.

15

Gemäß einer Ausführungsform der Erfindung beträgt die mittlere Teilchengröße der Komponente B 50 bis 200 nm, bevorzugt ca. 100 nm.

20

Gemäß einer weiteren Ausführungsform der Erfindung beträgt die mittlere Teilchengröße der Komponente B 200 bis 1000 nm, bevorzugt ca. 500 nm.

25

Gemäß einer besonders bevorzugten Ausführungsform der Erfindung ist die Teilchengrößenverteilung der Komponente B bimodal, wobei die Komponente B zu 10 bis 90 Gew.-%, bevorzugt zu 30 bis 90 Gew.-%, besonders bevorzugt zu 50 bis 75 Gew.-% aus einem kleinteiligen Pfropfcopolymerisat mit einer mittleren Teilchengröße von 50 bis 200 nm, bevorzugt ca. 100 nm und zu 10 bis 90 Gew.-%, bevorzugt zu 10 bis 70 Gew.-%, besonders bevorzugt zu 25 bis 50 Gew.-% aus einem großteiligen Pfropfcopolymerisat mit einer mittleren Teilchengröße von 250 bis 1000 nm, bevorzugt ca. 500 nm, besteht.

30

Als mittlere Teilchengröße bzw. Teilchengrößenverteilung werden die aus der

integralen Massenverteilung bestimmten Größen angegeben. Bei den erfindungsgemäßen mittleren Teilchengrößen handelt es sich in allen Fällen um die Gewichtsmittel der Teilchengrößen, wie sie mittels einer analytischen Ultrazentrifuge entsprechend der Methode von W. Scholtan und H. Lange, Kolloid-Z. und Z.-Polymere 250 (1972), Seiten 782 - 796, bestimmt wurden. Die Ultrazentrifugenmessung liefert die integrale Massenverteilung des Teilchendurchmessers einer Probe. Hieraus läßt sich entnehmen, wieviel Gewichtsprozent der Teilchen einen Durchmesser gleich oder kleiner einer bestimmten Größe haben. Der mittlere Teilchendurchmesser, der auch als  $d_{50}$ -Wert der integralen Massenverteilung bezeichnet wird, ist dabei als der Teilchendurchmesser definiert, bei dem 50 Gew.-% der Teilchen einen kleineren Durchmesser haben als der Durchmesser, der dem  $d_{50}$ -Wert entspricht. Ebenso haben dann 50 Gew.-% der Teilchen einen größeren Durchmesser als der  $d_{50}$ -Wert. Zur Charakterisierung der Breite der Teilchengrößenverteilung der Kautschukteilchen werden neben dem  $d_{50}$ -Wert (mittlerer Teilchendurchmesser) die sich aus der integralen Massenverteilung ergebenden  $d_{10}$ - und  $d_{90}$ -Werte herangezogen. Der  $d_{10}$ - bzw.  $d_{90}$ -Wert der integralen Massenverteilung ist dabei entsprechend dem  $d_{50}$ -Wert definiert mit dem Unterschied, daß sie auf 10 bzw. 90 Gew.-% der Teilchen bezogen sind. Der Quotient

$$\frac{d_{90} - d_{10}}{d_{50}} = Q$$

stellt ein Maß für die Verteilungsbreite der Teilchengröße dar. Als Komponente A erfindungsgemäß verwendbare Emulsionspolymerisate A weisen vorzugsweise  $Q$ -Werte kleiner als 0,5, insbesondere kleiner als 0,35 auf.

Das Pfropfcopolymerisat B ist im allgemeinen ein- oder mehrstufig, d.h. ein aus einem Kern und einer oder mehreren Hüllen aufgebautes Polymerisat. Das Polymerisat besteht aus einer Grundstufe (Pfropfkern) B1 und einer oder - bevorzugt - mehreren darauf gepfropften Stufen B2 (Pfropfaufgabe), den sogenannten Pfropfstufen oder Pfropfhüllen.

Durch einfache Pfropfung oder mehrfache Pfropfung können eine oder mehrere Pfropfhüllen auf die Kautschukteilchen aufgebracht werden, wobei jede Pfropfhülle eine andere Zusammensetzung haben kann. Zusätzlich zu den pfropfenden  
5 Monomeren können polyfunktionelle vernetzende oder reaktive Gruppen enthaltende Monomere mit aufgepfropft werden (s. z.B. EP-A 0 230 282, DE-A 36 01 419, EP-A 0 269 861).

Gemäß einer Ausführungsform der Erfindung dienen als Pfropfgrundlage B1  
10 vernetzte Acrylsäureester-Polymerisate mit einer Glasübergangstemperatur unter 0°C. Die vernetzten Acrylsäureester-Polymerisate sollen vorzugsweise eine Glasübergangstemperatur unter -20°C, insbesondere unter -30°C, besitzen.

Prinzipiell ist auch ein mehrschaliger Aufbau des Pfropfcopolymerisats möglich,  
15 wobei mindestens eine innere Schale eine Glasübergangstemperatur von unter 0°C und die äußerste Schale eine Glasübergangstemperatur von mehr als 23°C aufweisen sollte.

In einer bevorzugten Ausführungsform besteht die Pfropfauflage B2 aus mindestens  
20 einer Pfropfhülle und die äußerste Pfropfhülle davon hat eine Glasübergangstemperatur von mehr als 30°C, wobei ein aus den Monomeren der Pfropfauflage B2 gebildetes Polymer eine Glasübergangstemperatur von mehr als 80°C aufweisen würde.

Geeignete Herstellverfahren für Pfropfcopolymerisate B sind die Emulsions-, Lösungs-, Masse- oder Suspensionspolymerisation. Bevorzugt werden die Pfropfcopolymerisate B durch radikalische Emulsionspolymerisation hergestellt, bei  
5 Temperaturen von 20°C - 90°C unter Verwendung wasserlöslicher und oder öllöslicher Initiatoren wie Peroxodisulfat oder Benzylperoxid, oder mit Hilfe von Redoxinitiatoren. Redoxinitiatoren eignen sich auch zur Polymerisation unterhalb von 20°C.

10 Geeignete Emulsionspolymerisationsverfahren sind beschrieben in DE-A-28 26 925, DE-A 31 49 358 und in DE-C-12 60 135.

Der Aufbau der Pfropfhüllen erfolgt vorzugsweise im Emulsionspolymerisationsverfahren wie es beschrieben ist in den DE-A-32 27 555, 31 49 357, 31 49 358,  
15 34 14 118. Das definierte Einstellen der erfindungsgemäßen Teilchengrößen von 50 - 1000 nm erfolgt bevorzugt nach den Verfahren, die beschrieben sind in der DE-C-12 60 135 und DE-A-28 26 925, bzw. Applied Polymer Science, Band 9 (1965), Seite 2929. Das Verwenden von Polymerisaten mit unterschiedlichen Teilchengrößen ist beispielsweise bekannt aus DE-A-28 26 925 und US 5,196,480.

20

Als Komponente C enthalten die erfindungsgemäßen Formmassen 1 bis 50 Gew.-%, bevorzugt 10 bis 25 Gew.-%, besonders bevorzugt 12 bis 20 Gew.-% eines Copolymerisats aus den Monomeren

25 c1) 75 bis 90 Gew.-%, bevorzugt 77 bis 90 Gew.-%, besonders bevorzugt 81 bis <sup>9</sup>~~90~~ Gew.-%, mindestens eines vinylaromatischen Monomeren als Komponente C1 und

30 c2) 10 bis 25 Gew.-%, vorzugsweise 10 bis 23 Gew.-%, besonders bevorzugt 10 bis 19 Gew.-%, insbesondere 15 bis 19 Gew.-%, Acrylnitril und/oder Methacrylnitril als Komponente C2.

Als vinylaromatische Monomere sind die oben stehend genannten Monomere C1 und die oben stehend als Komponente B21 genannten vinylaromatischen Monomere geeignet. Vorzugsweise ist Komponente C ein amorphes Polymerisat, wie es  
5 vorstehend als Pfropfaufgabe B2 beschrieben ist. Gemäß einer Ausführungsform der Erfindung wird als Komponente C ein Copolymerisat von Styrol und/oder  $\alpha$ -Methylstyrol mit Acrylnitril verwendet. Der Acrylnitrilgehalt in diesen Copolymerisaten der Komponente C liegt dabei nicht oberhalb 25 Gew.-% und beträgt im allgemeinen 10 bis 25 Gew.-%, bevorzugt 10 bis 22 Gew.-%, besonders  
10 bevorzugt 10 bis 19 Gew.-%, insbesondere 15 bis 19 Gew.-%. Zur Komponente C zählen auch die bei der Pfropfcopolymerisation zur Herstellung der Komponente B entstehenden freien, nicht gepfropften Styrol-Acrylnitril-Copolymerisate. Je nach den bei Pfropfcopolymerisation für die Herstellung der Pfropfcopolymerisats A gewählten Bedingungen kann es möglich sein, daß bei der Pfropfcopolymerisation  
15 schon ein hinreichender Anteil an Komponente C gebildet worden ist. Im allgemeinen wird es jedoch erforderlich sein, die bei der Pfropfcopolymerisation erhaltenen Produkte mit zusätzlicher, separat hergestellter Komponente C abzumischen.

20 Bei dieser zusätzlichen, separat hergestellten Komponente C kann es sich vorzugsweise um ein Styrol/Acrylnitril-Copolymerisat, ein  $\alpha$ -Methylstyrol/Acrylnitril-Copolymerisat oder ein  $\alpha$ -Methylstyrol/Styrol/Acrylnitril-Terpolymerisat handeln. Wesentlich ist, daß der Gehalt an Acrylnitril in den Copolymerisaten C 25 Gew.-%, insbesondere 19 Gew.-% nicht übersteigt. Die Copolymerisate können  
25 einzeln oder auch als Gemisch für die Komponente C eingesetzt werden, so daß es sich bei der zusätzlichen, separat hergestellten Komponente C der erfindungsgemäßen Formmassen beispielsweise um ein Gemisch aus einem Styrol/Acrylnitril-Copolymerisat (PSAN) und einem  $\alpha$ -Methylstyrol/Acrylnitril-Copolymerisat handeln kann. Auch der Acrylnitrilgehalt der verschiedenen  
30 Copolymerisate der Komponente C kann unterschiedlich sein. Vorzugsweise besteht die Komponente C jedoch nur aus einem oder mehreren Styrol/Acrylnitril-

Copolymerisaten, wobei die Copolymerisate einen unterschiedlichen Gehalt an Acrylnitril aufweisen können. In einer insbesondere bevorzugten Ausführungsform besteht die Komponente C aus nur einem Styrol/Acrylnitril-Copolymerisat.

5 Als Komponente D enthalten die erfindungsgemäßen Formmassen 1 bis 50 Gew.-%, bevorzugt 5 bis 50 Gew.-%, besonders bevorzugt 7 bis 45 Gew.-%, insbesondere 10 bis 40 Gew.-% an Glasfasern. Dabei handelt es sich um kommerziell erhältliche Produkte.

10 Diese haben in der Formmasse im allgemeinen eine mittlere Länge von 0,1 bis 0,5 mm, vorzugsweise 0,1 bis 0,4 mm und einen Durchmesser im Bereich von 6 bis 20 µm. Besonders bevorzugt sind Glasfasern aus E-Glas. Zur Erzielung einer besseren Haftung können die Glasfasern mit Organosilanen, Epoxisilanen oder anderen Polymerüberzügen beschichtet sein.

15

Als Komponente E können die erfindungsgemäßen Formmassen 0 bis 25 Gew.-% weitere, mit den Komponenten A und/oder C homogen mischbare oder in diesen dispergierbare Polymere enthalten. Es können beispielsweise einschlägig übliche (gepfropfte) Kautschuke Verwendung finden, wie Ethylen-Vinylacetat-Kautschuke, 20 Siliconkautschuke, Polyetherkautschuke, hydrierte Dienkautschuke, Polyalkenamerkautschuke, Acrylatkautschuke, Ethylen-Propylen-Kautschuke, Ethylen-Propylen-Dien-Kautschuke und Butylkautschuke, Methylmethacrylat-Butadien-Styrol (MBS)-Kautschuke, Methylmethacrylat-Butylacrylat-Styrol-Kautschuke, sofern diese mit der aus den Komponenten A, B und C gebildeten 25 Mischphase mischbar bzw. in dieser dispergierbar sind. Bevorzugt werden Acrylatkautschuk, Ethylen-Propylen(EP)-Kautschuk, Ethylen-Propylen-Dien(EPDM)-Kautschuk Verwendung finden. In Frage kommen ferner mit der aus den Komponenten B und C gebildeten Mischphase verträgliche bzw. mischbare Polymere oder Copolymere wie Polycarbonate, Polymethacrylate, insbesondere 30 PMMA, Polyphenylenether oder syndiotaktisches Polystyrol. In Frage kommen ferner Reaktivkautschuke, die an den Polyester (Komponente A) über eine kovalente

Bindung anbinden, wie mit Säureanhydriden, wie Maleinsäureanhydrid, oder Epoxy-Verbindungen, wie Glycidyl-Methacrylat, gepfropfte Polyolefinkautschuke und/oder partikuläre Acrylatkautschuke. Schließlich ist auch die Verwendung eines oder mehrerer Polymere bzw. Copolymere möglich, die in der Grenzfläche zwischen  
5 der aus den Komponenten B und/oder C gebildeten amorphen Phase und der aus der Komponente A gebildeten kristallinen oder teilkristallinen Phase vorliegen und so für eine bessere Anbindung der beiden Phasen sorgen. Beispiele solcher Polymere sind Pfropfcopolymere aus PBT und PSAN oder segmentierte Copolymere wie Block-Copolymere oder Multiblock-Copolymere aus mindestens einem Segment  
10 aus PBT mit  $M_w > 1000$  und mindestens einem Segment aus PSAN oder einem mit PSAN verträglichen/mischbaren Segment mit  $M_w > 1000$ .

Als Komponente F enthalten die erfindungsgemäßen Formmassen 0 bis 10 Gew.-% übliche Zusatzstoffe. Als solche Zusatzstoffe seien beispielsweise genannt: UV-  
15 Stabilisatoren, Oxidationsverzögerer, Gleit- und Entformungsmittel, Farbstoffe, Pigmente, Färbemittel, Keimbildungsmittel, Antistatika, Antioxidantien, Stabilisatoren zur Verbesserung der Thermostabilität, zur Erhöhung der Lichtstabilität, zum Anheben der Hydrolysebeständigkeit und der Chemikalienbeständigkeit, Mittel gegen die Wärmezersetzung und insbesondere die Schmier/Gleitmittel, die für die  
20 Herstellung von Formkörpern bzw. Formteilen zweckmäßig sind. Das Eindosieren dieser weiteren Zusatzstoffe kann in jedem Stadium des Herstellungsprozesses erfolgen, vorzugsweise jedoch zu einem frühen Zeitpunkt, um frühzeitig die Stabilisierungseffekte (oder anderen speziellen Effekte) des Zusatzstoffes auszunutzen. Wärmestabilisatoren bzw. Oxidationsverzögerer sind üblicherweise  
25 Metallhalogenide (Chloride, Bromide, Iodide), die sich von Metallen der Gruppe I des Periodensystems der Elemente ableiten (wie Li, Na, K, Cu).

Geeignete Stabilisatoren sind die üblichen gehinderten Phenole, aber auch Vitamin E bzw. analog aufgebaute Verbindungen. Auch HALS-Stabilisatoren (Hindered  
30 Amine Light Stabilizers), Benzophenone, Resorcine, Salicylate, Benzotriazole und andere Verbindungen sind geeignet (beispielsweise Irganox®, Tinuvin®, wie

Tinuvin® 770 (HALS-Absorber, Bis (2,2,6,6-tetramethyl-4-piperidyl)sebacat) oder Tinuvin®P (UV-Absorber - (2H-Benzotriazol-2-yl)-4-methylphenol), Topanol®). Diese werden üblicherweise in Mengen bis zu 2 Gew.-% (bezogen auf das Gesamtgemisch) verwendet.

5

Geeignete Gleit- und Entformungsmittel sind Stearinsäuren, Stearylalkohol, Stearinsäureester bzw. allgemein höhere Fettsäuren, deren Derivate und entsprechende Fettsäuregemische mit 12 - 30 Kohlenstoffatomen. Die Mengen dieser Zusätze liegen im Bereich von 0,05 - 1 Gew.-%.

10

Auch Siliconöle, oligomeres Isobutylen oder ähnliche Stoffe kommen als Zusatzstoffe in Frage; die üblichen Mengen betragen 0,05 - 5 Gew.-%. Pigmente, Farbstoffe, Farbaufheller, wie Ultramarinblau, Phthalocyanine, Titandioxid, Cadmiumsulfide, Derivate der Perylentetracarbonsäure sind ebenfalls verwendbar.

15 Als Zusatzstoff kann ferner Ruß sowohl rein als auch als Masterbatch eingesetzt werden.

Verarbeitungshilfsmittel und Stabilisatoren wie UV-Stabilisatoren, Schmiermittel und Antistatika werden üblicherweise in Mengen von 0,01 - 5 Gew.-% verwendet, bezogen auf die gesamte Formmasse.

20

Auch Keimbildungsmittel, wie Talkum, Calciumfluorid, Natriumphenylphosphinat, Aluminiumoxid oder feinteiliges Polytetrafluorethylen können in Mengen z.B. bis zu 5 Gew.-%, bezogen auf die gesamte Formmasse, angewandt werden. Weichmacher, wie Phthalsäuredioctylester, Phthalsäuredibenzylester, Phthalsäurebutylbenzylester, Kohlenwasserstofföle, N-(n-Butyl)benzolsulfonamid, o- und p-Toluolethylsulfonamid werden vorteilhaft in Mengen bis etwa 5 Gew.-%, bezogen auf die Formmasse, zugesetzt. Färbemittel, wie Farbstoffe und Pigmente können in Mengen bis zu etwa 5 Gew.-%, bezogen auf die Formmasse, zugesetzt werden.

25  
30

Das Mischen der Komponenten A, B, C, D und gegebenenfalls E und F kann nach



jeder beliebigen Weise nach allen bekannten Methoden erfolgen. Beim Mischen können die Komponenten A – D und gegebenenfalls E und F als solche oder auch in Form von Mischungen der einen Komponente mit einer oder mehreren der anderen Komponenten eingesetzt werden. Beispielsweise kann die Komponente B mit einem  
5 Teil oder der gesamten Komponente C und gegebenenfalls den Komponenten E und F vorgemischt und anschließend mit den übrigen Komponenten gemischt werden. Wenn die Komponenten B und C beispielsweise durch Emulsionspolymerisation hergestellt worden sind, ist es möglich, die erhaltenen Polymerdispersionen miteinander zu vermischen, darauf die Polymerisate gemeinsam auszufällen und das  
10 Polymerisatgemisch aufzuarbeiten. Vorzugsweise erfolgt jedoch das Abmischen der Komponenten B und C durch gemeinsames Extrudieren, Kneten oder Verwalzen der Komponenten, wobei die Komponenten B und C, sofern erforderlich, zuvor aus der bei der Polymerisation erhaltenen Lösung oder wässrigen Dispersion isoliert worden sind. Die erfindungsgemäßen thermoplastischen Formmassen können  
15 beispielsweise hergestellt werden, indem man die Komponente A mit jeweils den Komponenten B und C oder mit einer Mischung aus diesen, und gegebenenfalls mit den Komponenten E und F mischt, in einem Extruder aufschmilzt und die Glasfasern über ein Einlaß am Extruder zuführt.

20 Die erfindungsgemäßen Formmassen können nach den bekannten Verfahren der Thermoplastverarbeitung zu Formteilen verarbeitet werden. Insbesondere kann deren Herstellung durch Thermoformen, Extrudieren, Spritzgießen, Kalandrieren, Hohlkörperblasen, Pressen, Preßsintern, Tiefziehen oder Sintern, vorzugsweise durch Spritzgießen erfolgen. Die aus den erfindungsgemäßen Formmassen  
25 herstellbaren Formteile sind ebenfalls Gegenstand der vorliegenden Erfindung.

Die aus den erfindungsgemäßen Formmassen hergestellten Formteile weisen nur geringe Emissionen an flüchtigen Bestandteilen mit einem wahrnehmbaren Geruch auf. Das Geruchsverhalten von Polymerwerkstoffen wird nach DIN 50011 / PV  
30 3900 beurteilt und gilt für Bauteile des Fahrzeuginnenraums. Das Ergebnis der Geruchsprüfung nach dieser Norm ist im Falle der erfindungsgemäßen Formteile im

allgemeinen besser als Note 5, bevorzugt besser als Note 4, besonders bevorzugt besser als Note 3,5. Die Kohlenstoff-Emission der Formteile nach PV 3341 ist im allgemeinen  $< 50 \mu\text{g/g}$ , bevorzugt  $< 40 \mu\text{g/g}$ , besonders bevorzugt  $< 30 \mu\text{g/g}$ .

- 5 Die erfindungsgemäßen Formteile weisen weiterhin eine gute Wärmeformbeständigkeit auf. Die Vicat B-Erweichungstemperatur ist im allgemeinen  $> 130^\circ\text{C}$ , bevorzugt  $> 140^\circ\text{C}$ , besonders bevorzugt  $> 150^\circ\text{C}$ .

- 10 Die erfindungsgemäßen Formteile weisen ferner ein gutes Wärmealterungsverhalten auf. So ist die Schlagzähigkeit der erfindungsgemäßen Formteile nach ISO 179/1eU nach 1000 Stunden dauernder Wärmelagerung bei  $130^\circ\text{C}$  im allgemeinen  $> 25 \text{ kJ pro m}^2$ , bevorzugt  $> 30 \text{ kJ pro m}^2$ . Die Bruchdehnung der erfindungsgemäßen Formteile ist nach 1000 Stunden dauernder Wärmelagerung bei  $130^\circ\text{C}$  im allgemeinen  $> 1,5\%$ , bevorzugt  $> 2\%$ .

- 15 Die erfindungsgemäßen Formteile weisen ferner gute mechanische Eigenschaften auf. So ist ihr Elastizitätsmodul im allgemeinen  $> 6000$ , bevorzugt  $> 6500 \text{ MPa}$ , ihre Streckspannung im allgemeinen  $> 100$ , bevorzugt  $> 110 \text{ MPa}$ , ihre Schlagzähigkeit nach ISO 179/1eU im allgemeinen  $> 40$ , bevorzugt  $> 45 \text{ kJ pro m}^2$ , ihre Schlagzähigkeit ohne vorherige Wärmelagerung nach ISO 179/1eA, im allgemeinen  $> 6 \text{ kJ pro m}^2$  und ihre HDT B (gemessen nach ISO 75, Ausführungsform B) im allgemeinen  $> 190^\circ\text{C}$ , bevorzugt  $> 200^\circ\text{C}$  und ihre Fließfähigkeit (MVR  $250^\circ\text{C}/10 \text{ kp}$  Auflagekraft)  $> 20$ , bevorzugt  $> 40 \text{ g/cm}^3$ .

- 25 Die erfindungsgemäßen Formteile weisen, auch nach 1000 h dauernder Wärmelagerung bei  $130^\circ\text{C}$ , bei  $-30^\circ\text{C}$  kein Splitterverhalten im Durchstoßversuch (2 und 3 mm Plattendurchmesser, gemäß ISO 6603/2) auf.

- 30 Die erfindungsgemäßen Formteile eignen sich aufgrund ihrer hohen Wärmeformbeständigkeit, ihrer guten Wärmealterungsbeständigkeit, ihren guten mechanischen Eigenschaften sowie ihrer guten Oberflächeneigenschaften für eine

Vielzahl von Anwendungen. Nur beispielhaft seien genannt: Kameragehäuse, Stutzen für Ferngläser, Wrasenkanal für Dunstabzugshaben, Teile für Dampfkochtöpfe, Gehäuse für Heißluftgrill und Pumpengehäuse.

- 5     Aufgrund der oben genannten Eigenschaften eignen sich die erfindungsgemäßen Formteile insbesondere für Anwendungen in Kraftfahrzeugen.

Erfindungsgemäße Formteile sind daher insbesondere aus den erfindungsgemäßen Formmassen hergestellte Teile wie Lichtschaltergehäuse, Lampengehäuse, Gehäuse  
10     für die Zentralelektrik, Steckerleisten, Steckverbinder, Gehäuse für ABS-Regler, Kennzeichentafelträger sowie Gepäckträgerdachleisten.

Aufgrund ihres guten Emissionsverhaltens sind die erfindungsgemäßen Formteile insbesondere für Anwendungen im Kraftfahrzeug-Innenraum geeignet.  
15     Erfindungsgemäße Formteile sind daher insbesondere aus den erfindungsgemäßen Formmassen hergestellte Abdeckungen, Ablagefächer, Instrumententafelträger, Türbrüstungen, Teile für die Mittelkonsole sowie Halterungen für Radio und Klimaanlage, Blenden für die Mittelkonsole, Blenden für Radio, Klimaanlage und Aschenbecher, Verlängerungen der Mittelkonsole, Stautaschen, Ablagen für die  
20     Fahrer und Beifahrertür, Ablagen für die Mittelkonsole, Bauteile für den Fahrer- und den Beifahrersitz, wie Sitzverkleidungen, Defrosterkanal, Innenspiegelgehäuse, Schiebedachelemente wie Schiebedachrahmen, Instrumentenhutzen, Instrumentenfassungen, Ober- und Unterschale für den Lenkstock, Luftführungskanäle, Luftausströmer und Zwischenstücke für Personenanströmer  
25     und Defrosterkanal, Türseitenverkleidungen, Verkleidungen im Kniebereich, Luftaustrittsdüsen, Entfrosteröffnungen, Schalter und Hebel. Diese Anwendungen stehen nur beispielhaft für denkbare Kraftfahrzeug-Innenanwendungen.

Gegenstand der Erfindung ist auch die Verwendung der erfindungsgemäßen  
30     Formmassen für die Herstellung der genannten Formteile.

Die Erfindung wird durch die nachstehenden Beispiele näher erläutert:

5

**Beispiele:**

Beispiele 1 bis 4 und Vergleichsbeispiel

10 Entsprechend den Angaben in der nachstehenden Tabelle 1 werden die angegebenen Mengen Polybutylenterephthalat (PBT), Standard- bzw. Recyclat-Polyethylenterephthalat (PET), Glasfasern Pfropfkautschuke P1 und P2, Copolymerisate PSAN 1, PSAN 2 und PSAN 3 und Additive in einem Schneckenextruder bei einer Temperatur von 250°C bis 270°C gemischt. Aus den  
15 dadurch gebildeten Formmassen werden die den betreffenden DIN-Normen entsprechenden Probekörper spritzgegossen.

P1 ist ein kleinteiliger ASA-Pfropfkautschuk mit 25 Gew.-% Acrylnitril in der SAN-Pfropfhülle mit einer mittleren Teilchengröße von ca. 100 nm.

20

P2 ist ein großteiliger ASA-Pfropfkautschuk mit einem mittleren Teilchendurchmesser von ca. 500 nm.

PSAN 1 ist ein Styrol/Acrylnitril-Copolymerisat mit 25 Gew.-% Acrylnitril.

25

PSAN 2 ist ein Styrol-/Acrylnitril-Copolymerisat mit 19 Gew.-% Acrylnitril.

PSAN 3 ist ein Styrol-/Acrylnitril-Copolymerisat mit 35 Gew.-% Acrylnitril.

30 Die Beurteilung des Emissionsverhaltens erfolgte nach DV 3341 sowie nach DIN 50011 / PV 3900 C3.

Die Messung der Geruchsemission nach DIN 50011/PV3900 C3 erfolgte wie folgt:

5 In einem 1 l-Gefäß mit geruchsneutraler Dichtung und Deckel wurde eine Probekörpermengung von 50 cm<sup>3</sup> fest verschlossen und in einer vorgeheizten Wärmekammer mit Luftumwälzung bei 80°C während 2 Stunden gelagert. Nach Entnahme des Prüfgefäßes aus der Wärmekammer wurde das Prüfgefäß auf 60°C abgekühlt, bevor die Bewertung durch mindestens 3 Prüfer erfolgte. Die Geruchsbeurteilung erfolgt anhand der Bewertungsskala mit den Noten 1 bis 6, wobei halbe Zwischenschritte möglich sind.

10

Bewertungsskala:

- |    |        |   |
|----|--------|---|
|    | Note 1 | nicht wahrnehmbar                             |
|    | Note 2 | wahrnehmbar, nicht störend                    |
| 15 | Note 3 | deutlich wahrnehmbar, aber noch nicht störend |
|    | Note 4 | störend                                       |
|    | Note 5 | stark störend                                 |
|    | Note 6 | unerträglich                                  |
- 20 Tabelle 2 enthält die Ergebnisse der Geruchsprüfung sowie die Ergebnisse der darüber hinaus durchgeführten mechanischen Prüfungen.

Tabelle 1:

Einsatzstoff [Gew.-%]	Vergleichs- beispiel	Beispiel 1	Beispiel 2	Beispiel 3
PBT	46,62	46,62	46,62	46,62
Glasfaser	20	20	20	20
PET	9	9	9	
P 1	12	3	3	
P 2		2	2	12
PSAN 1		17		
PSAN 2			16	10
PSAN 3	10			
Loxiol	0,58	0,58	0,58	0,58
Ruß	1,8	1,8	1,8	1,8

Tabelle 2:

	Vergleichs- beispiel	Beispiel 1	Beispiel 2	Beispiel 3
Fließfähigkeit nach MVR 250/10 [cm <sup>3</sup> /10 min]	18	16	58	25
Dichte [g/cm <sup>3</sup> ]	1,391	1,388	1,367	1,372
Schlagzähigkeit nach ISO 179/1eU	49	48	52	53
Kerbschlagzähigkeit nach ISO 179/1eA [kJ/m <sup>2</sup> ]	6,7	7,0	7,2	7,6
Elastizitätsmodul nach DIN 53457 [MPa]	6850	7600	7600	6800
Bruchspannung nach DIN 53457 [MPa]	103	118	120	103
Bruchdehnung nach DIN 53457 [%]	2,4	2,3	2,5	2,4
Durchstoßarbeit nach ISO 6603/2 [Nm]	2,5	2	3	3
HDT nach ISO 75 B [°C]	208	207	205	203
Geruchsprüfung nach PV 3900 C3 [Note]	4	3,5	3	3,5
Kohlenstoff-Emission nach PV 3341 [µg C/g]	70	38	28	38

## Patentansprüche

- 5 1. Glasfaserverstärkte thermoplastische Formmasse, enthaltend, bezogen auf die Summe der Komponenten A bis D und gegebenenfalls E und F, die insgesamt 100 Gew.-% ergibt,
- 10 a) 10 bis 97 Gew.-% mindestens eines aromatischen Polyesters als Komponente A,
- b) 1 bis 50 Gew.-% mindestens eines teilchenförmigen Ppropfcopolymerisats mit einer Glasübergangstemperatur der Weichphase unterhalb von 0°C und einer mittleren Teilchengröße von 50 bis 1000 nm als Komponente B,
- 15 c) 1 bis 50 Gew.-% mindestens eines Copolymerisats aus den Monomeren
- c1) 50 bis 90 Gew.-% mindestens eines vinylaromatischen Monomeren als Komponente C1 und
- 20 c2) 10 bis 25 Gew.-% Acrylnitril und/oder Methacrylnitril als Komponente C2,
- 25 als Komponente C,
- d) 1 bis 50 Gew.-% Glasfasern als Komponente D,
- e) 0 bis 25 Gew.-% weitere, mit den Komponenten A und/oder C homogenen mischbare oder in diesen dispergierbare, verträgliche Polymere als
- 30 Komponente E,
- f) 0 bis 10 Gew.-% übliche Zusatzstoffe wie UV-Stabilisatoren,



## Oxidationsverzögerer, Gleit- und Entformungsmittel als Komponente F.

2. Formmasse nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Komponente A besteht aus
- 5
- a1) 60 bis 99 Gew.-% Polybutylenterephthalat und
- a2) 1 bis 40 Gew.-% Polyethylenterephthalat.
- 10 3. Formmasse nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß die Komponente B besteht aus
- b1) 50 bis 90 Gew.-% einer teilchenförmigen Pfropfgrundlage B1 aus den Monomeren
- 15
- b11) 75 bis 99,9 Gew.-% eines C<sub>1</sub>-C<sub>10</sub>-Alkylesters der Acrylsäure als Komponente B11,
- b12) 0,1 bis 10 Gew.-% mindestens eines polyfunktionellen Monomeren mit mindestens zwei olefinischen, nicht konjugierten Doppelbindungen als Komponente B12 und
- 20
- b13) 0 bis 24,9 Gew.-% eines oder mehrerer weiterer copolymerisierbarer Monomere als Komponente B13,
- 25 und
- b2) 10 bis 50 Gew.-% einer Pfropfauflage B2 aus den Monomeren
- b21) 50 bis 90 Gew.-% eines vinylaromatischen Monomeren als Komponente B21 und
- 30
- b22) 10 bis 50 Gew.-% Acrylnitril und/oder Methacrylnitril als Komponente B22.

4. Formmasse nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß die Komponenten B21 und/oder C1 unsubstituiertes Styrol sind.
5. Formmasse nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß die Komponente B1 aus den Komponenten B11 und B12 besteht.
6. Formmasse nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß die Komponente B zu 10 bis 90 Gew.-% aus einem kleinteiligen Pffropfcopolymerisat mit einer mittleren Teilchengröße von 50 bis 200 nm und zu 10 bis 90 Gew.-% aus einem großteiligen Pffropfcopolymerisat mit einer mittleren Teilchengröße von 250 bis 1000 nm besteht.
7. Formteile aus Formmassen gemäß einem der Ansprüche 1 bis 6
8. Formteile nach Anspruch 7 mit einem oder mehreren der Merkmale:
  - Kohlenstoff-Emission nach PV 3341  $< 40 \mu\text{g C/g}$
  - Ergebnis der Geruchsprüfung nach DIN 50 011/PV 3900 besser als Note 4;
  - Vicat B-Erweichungstemperatur  $> 145^\circ\text{C}$ ;
  - Schlagzähigkeit nach ISO 179/1eU nach 1000 h dauernder Wärmelagerung bei  $130^\circ\text{C} > 30 \text{ kJ/m}^2$
  - Bruchdehnung nach DIN 53457 nach 1000 h dauernder Wärmelagerung bei  $130^\circ\text{C} > 2\%$ .
9. Formteile nach Anspruch 8 für den Innenraum von Kraftfahrzeugen.
10. Verwendung von Formmassen, wie sie in einem der Ansprüche 1 bis 6 definiert sind, zur Herstellung von Formteilen für den Innenraum von Kraftfahrzeugen.

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No  
PCT/EP 99/07208

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 C08L67/02 // (C08L67/02, 51:04, 25:12)

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 C08L

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP 0 310 978 A (BASF AG) 12 April 1989 (1989-04-12)	1,3-5,7, 8
Y	claims 1-4; examples 1,3 page 3, line 54 -page 4, line 7 ---	2,6
Y	EP 0 131 202 A (BAYER AG) 16 January 1985 (1985-01-16) claims 1,9; examples 17,20,26,28; tables 2,6-8 page 12, line 9 -page 14, line 11 page 24, line 1 - line 6 ---	2,6
X	EP 0 310 977 A (BASF AG) 12 April 1989 (1989-04-12)	1,3-5,7, 8
Y	claims 1-4; examples 1,4,5 ---	9,10
	-/--	

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

### \* Special categories of cited documents :

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"Z" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

28 December 1999

Date of mailing of the international search report

14/01/2000

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040. Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Krische, D

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No  
PCT/EP 99/07208

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	BLINNE, G. ET AL.: PLASTVERARBEITER, vol. 47, no. 3, 1996, page 82,85 XP002126700 the whole document	9,10
X	DE 37 33 839 A (BASF AG) 20 April 1989 (1989-04-20)	1,3-5,7, 8
Y	claims 1-4; example 4	2,6
Y	EP 0 643 104 A (BASF AG) 15 March 1995 (1995-03-15) claims 1-7; example 6	2,6
P,X	DE 197 50 627 A (BASF AG) 20 May 1999 (1999-05-20) claims 1-10; examples V5-7,5-7 page 5, line 41 - line 59	1,3-8
X	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 123, no. 24, 11 December 1995 (1995-12-11) Columbus, Ohio, US; abstract no. 315814, XP002126701 abstract & JP 07 173363 A (DAICEL CHEM.) 11 July 1995 (1995-07-11)	1,2,4, 7-10
X	EP 0 392 357 A (BASF AG) 17 October 1990 (1990-10-17)	1-5,7,8
Y	claims 1-4; example 1 page 4, line 19 - line 48 & DE 39 11 828 A cited in the application	9,10
Y	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 125, no. 24, 9 December 1996 (1996-12-09) Columbus, Ohio, US; abstract no. 302861, XP002126702 abstract & JP 08 225723 A (DENKI KAGAKU KOGYO KK) 3 September 1996 (1996-09-03)	9,10

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 99/07208

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0310978	A	12-04-1989	DE 3733857 A	27-04-1989
			DE 3877681 A	04-03-1993
			JP 1144446 A	06-06-1989
			US 4940746 A	10-07-1990
EP 0131202	A	16-01-1985	DE 3339001 A	17-01-1985
			JP 1923239 C	25-04-1995
			JP 6051833 B	06-07-1994
			JP 60036558 A	25-02-1985
			US 4535124 A	13-08-1985
EP 0310977	A	12-04-1989	DE 3733824 A	20-04-1989
			DE 3733829 A	20-04-1989
			JP 1144447 A	06-06-1989
			US 4939201 A	03-07-1990
DE 3733839	A	20-04-1989	NONE	
EP 0643104	A	15-03-1995	DE 4330490 A	16-03-1995
DE 19750627	A	20-05-1999	AU 1233699 A	07-06-1999
			WO 9925770 A	27-05-1999
JP 7173363	A	11-07-1995	NONE	
EP 0392357	A	17-10-1990	DE 3911828 A	18-10-1990
			DE 59009314 D	03-08-1995
			JP 2294356 A	05-12-1990
			JP 2845555 B	13-01-1999
			KR 149496 B	15-10-1998
			US 5219915 A	15-06-1993
JP 8225723	A	03-09-1996	NONE	

# INTERNATIONALE RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 99/07208

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES  
IPK 7 C08L67/02 /// (C08L67/02, 51:04, 25:12)

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 C08L

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X Y	EP 0 310 978 A (BASF AG) 12. April 1989 (1989-04-12)  Ansprüche 1-4; Beispiele 1,3 Seite 3, Zeile 54 -Seite 4, Zeile 7 ---	1,3-5,7, 8 2,6
Y	EP 0 131 202 A (BAYER AG) 16. Januar 1985 (1985-01-16) Ansprüche 1,9; Beispiele 17,20,26,28; Tabellen 2,6-8 Seite 12, Zeile 9 -Seite 14, Zeile 11 Seite 24, Zeile 1 - Zeile 6 ---	2,6
X Y	EP 0 310 977 A (BASF AG) 12. April 1989 (1989-04-12)  Ansprüche 1-4; Beispiele 1,4,5 ---	1,3-5,7, 8 9,10
	--- -/-	

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"Z" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

28. Dezember 1999

Abschließdatum des internationalen Recherchenberichts

14/01/2000

Name und Postanschrift der internationalen Recherchenbehörde  
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Krische, D

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 99/07208

## C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	BLINNE, G. ET AL.: PLASTVERARBEITER, Bd. 47, Nr. 3, 1996, Seite 82,85 XP002126700 das ganze Dokument ----	9,10
X	DE 37 33 839 A (BASF AG) 20. April 1989 (1989-04-20) ----	1,3-5,7, 8
Y	Ansprüche 1-4; Beispiel 4 ----	2,6
Y	EP 0 643 104 A (BASF AG) 15. März 1995 (1995-03-15) Ansprüche 1-7; Beispiel 6 ----	2,6
P,X	DE 197 50 627 A (BASF AG) 20. Mai 1999 (1999-05-20) Ansprüche 1-10; Beispiele V5-7,5-7 Seite 5, Zeile 41 - Zeile 59 ----	1,3-8
X	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 123, no. 24, 11. Dezember 1995 (1995-12-11) Columbus, Ohio, US; abstract no. 315814, XP002126701 Zusammenfassung & JP 07 173363 A (DAICEL CHEM.) 11. Juli 1995 (1995-07-11) ----	1,2,4, 7-10
X	EP 0 392 357 A (BASF AG) 17. Oktober 1990 (1990-10-17) ----	1-5,7,8
Y	Ansprüche 1-4; Beispiel 1 Seite 4, Zeile 19 - Zeile 48 & DE 39 11 828 A in der Anmeldung erwähnt ----	9,10
Y	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 125, no. 24, 9. Dezember 1996 (1996-12-09) Columbus, Ohio, US; abstract no. 302861, XP002126702 Zusammenfassung & JP 08 225723 A (DENKI KAGAKU KOGYO KK) 3. September 1996 (1996-09-03) -----	9,10

# INTERNATIONAL RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 99/07208

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 0310978 A	12-04-1989	DE 3733857 A DE 3877681 A JP 1144446 A US 4940746 A	27-04-1989 04-03-1993 06-06-1989 10-07-1990
EP 0131202 A	16-01-1985	DE 3339001 A JP 1923239 C JP 6051833 B JP 60036558 A US 4535124 A	17-01-1985 25-04-1995 06-07-1994 25-02-1985 13-08-1985
EP 0310977 A	12-04-1989	DE 3733824 A DE 3733829 A JP 1144447 A US 4939201 A	20-04-1989 20-04-1989 06-06-1989 03-07-1990
DE 3733839 A	20-04-1989	KEINE	
EP 0643104 A	15-03-1995	DE 4330490 A	16-03-1995
DE 19750627 A	20-05-1999	AU 1233699 A WO 9925770 A	07-06-1999 27-05-1999
JP 7173363 A	11-07-1995	KEINE	
EP 0392357 A	17-10-1990	DE 3911828 A DE 59009314 D JP 2294356 A JP 2845555 B KR 149496 B US 5219915 A	18-10-1990 03-08-1995 05-12-1990 13-01-1999 15-10-1998 15-06-1993
JP 8225723 A	03-09-1996	KEINE	



Patent- u. Rechtsanwälte  
Mannheim

10 DEZ. 1999

Frist:  
Bear.:

PCT

## PATENT COOPERATION TREATY

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

ISENBRUCK, Günter  
Bardehle, Pagenberg, Dost,  
Altenburg, Geissler, Is  
enbruck  
Theodor-Heuss-Anlage 12  
D-68165 Mannheim  
ALLEMAGNENOTIFICATION CONCERNING  
SUBMISSION OR TRANSMITTAL  
OF PRIORITY DOCUMENT

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

Date of mailing (day/month/year) 10 December 1999 (10.12.99)	<b>IMPORTANT NOTIFICATION</b>
Applicant's or agent's file reference NAE19980620PC	
International application No. PCT/EP99/07208	International filing date (day/month/year) 29 September 1999 (29.09.99)
International publication date (day/month/year) Not yet published	Priority date (day/month/year) 01 October 1998 (01.10.98)
Applicant BASF AKTIENGESELLSCHAFT et al	

1. The applicant is hereby notified of the date of receipt (except where the letters "NR" appear in the right-hand column) by the International Bureau of the priority document(s) relating to the earlier application(s) indicated below. Unless otherwise indicated by an asterisk appearing next to a date of receipt, or by the letters "NR", in the right-hand column, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
2. This updates and replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents.
3. An asterisk(\*) appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b). In such a case, **the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c)** which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.
4. The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which was not received by the International Bureau or which the applicant did not request the receiving Office to prepare and transmit to the International Bureau, as provided by Rule 17.1(a) or (b), respectively. In such a case, **the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c)** which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

<u>Priority date</u>	<u>Priority application No.</u>	<u>Country or regional Office or PCT receiving Office</u>	<u>Date of receipt of priority document</u>
01 Octo 1998 (01.10.98)	198 45 317.5	DE	09 Dece 1999 (09.12.99)

The International Bureau of WIPO  
34, chemin des Colombettes  
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No. (41-22) 740.14.35

Authorized officer

Taïeb Akremi TA

Telephone No. (41-22) 338.83.38

# VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT FÜR DAS GEBIET DES PATENTWESENS

Absender: DIE MIT DER INTERNATIONALEN VORLÄUFIGEN  
PRÜFUNG BEAUFTRAGTE BEHÖRDE

## PCT

<b>An</b> <b>ISENBRUCK, Günter</b> <b>BARDEHLE-PAGENBERG DOST</b> <b>ALTENBURG GEISSLER ISENBRUCK</b> <b>Theodor-Heuss-Anlage 12</b> <b>D-68165 Mannheim</b> <b>ALLEMAGNE</b>	
Patent- u. Rechtsanwälte Mannheim	<b>10. Mai 2000</b>  Frist: Bearb.:

### MITTEILUNG ÜBER DEN EINGANG DES ANTRAGS BEI DER ZUSTÄNDIGEN MIT DER INTERNATIONALEN VORLÄUFIGEN PRÜFUNG BEAUFTRAGTEN BEHÖRDE

(Regeln 59.3 e) und 61.1 b) Satz 1 PCT sowie  
Abschnitt 601 a) der Verwaltungsvorschriften)

Absendedatum (Tag/Monat/Jahr)	<b>09.05.00</b>
----------------------------------	-----------------

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts <b>NAE19980620PC</b>		<b>WICHTIGE MITTEILUNG</b>	
Internationales Aktenzeichen <b>PCT/EP 99/07208</b>	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) <b>29/09/1999</b>	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) <b>01/10/1998</b>	
Anmelder  <b>BASF AKTIENGESELLSCHAFT et al.</b>			

1. Dem Anmelder wird mitgeteilt, daß die mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragte Behörde nachstehendes Datum als Eingangsdatum des Antrags auf internationale vorläufige Prüfung der internationalen Anmeldung betrachtet:

20/04/2000

2. Dieses Eingangsdatum entspricht:

- ☒ dem tatsächlichen Eingangsdatum des Antrags bei der Behörde (Regel 61.1 b)).
- ☐ dem tatsächlichen Datum, an dem der Antrag für die Behörde entgegengenommen worden ist (Regel 59.3 e)).
- ☐ dem Datum, an dem die Behörde auf die Aufforderung zur Behebung von Mängeln des Antrags (Formblatt PCT/IPEA/404) hin die erforderlichen Berichtigungen erhalten hat.

3. ☐ **ACHTUNG:** Das Eingangsdatum liegt **NACH** dem Ablauf von 19 Monaten ab dem Prioritätsdatum. Folglich führt die im Antrag erfolgte Auswahl von Vertragsstaaten nicht zu einer Verschiebung des Eintritts in die nationale Phase bis zu 30 (oder in manchen Ämtern mehr) Monaten ab dem Prioritätsdatum (Artikel 39 (1)). Daher müssen die für den Eintritt in die nationale Phase erforderlichen Handlungen innerhalb von 20 (oder in manchen Ämtern mehr) Monaten ab dem Prioritätsdatum (Artikel 22) vorgenommen werden. Nähere Einzelheiten sind dem *PCT-Leitfaden für Anmelder*, BAND II zu entnehmen.

☐ (falls zutreffend) Diese Mitteilung gilt als Bestätigung der am \_\_\_\_\_ per Telefon, Fax oder persönlich erteilten Auskunft.

4. Nur wenn Punkt 3 zutrifft, wurde dem Internationalen Büro ein Exemplar dieser Mitteilung übermittelt.

Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde



Europäisches Patentamt  
 D-80298 München  
 Tel. (+49-89) 2399-0, Tx: 523656 epmu d  
 Fax: (+49-89) 2399-4465

Bevollmächtigter Bediensteter

**MORENO R A**

Tel. (+49-89) 2399-2658



# VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

Absender: MIT DER INTERNATIONALEN VORLÄUFIGEN  
PRÜFUNG BEAUFTRAGTE BEHÖRDE

An:

ISENBRUCK, Günter  
BARDEHLE PAGENBERG DOST  
ALTENBURG GEISSLER ISENBRUCK  
Theodor-Heuss-Anlage 12 Patent- u. Rechtsanwälte  
D-68165 Mannheim Mannheim  
ALLEMAGNE

28. Novale 23 Dez. 2000  
Frist: 1.02.2001

**PCT**

MITTEILUNG ÜBER DIE ÜBERSENDUNG  
DES INTERNATIONALEN VORLÄUFIGEN  
PRÜFUNGSBERICHTS  
(Regel 71.1 PCT)

Absenddatum  
(Tag/Monat/Jahr)

22.12.2000

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts  
NAE19980620PC

## WICHTIGE MITTEILUNG

Internationales Aktenzeichen  
PCT/EP99/07208

Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr)  
29/09/1999

Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr)  
01/10/1998

Anmelder  
BASF AKTIENGESELLSCHAFT et al.

1. Dem Anmelder wird mitgeteilt, daß ihm die mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragte Behörde hiermit den zu der internationalen Anmeldung erstellten internationalen vorläufigen Prüfungsbericht, gegebenenfalls mit den dazugehörigen Anlagen, übermittelt.
2. Eine Kopie des Berichts wird - gegebenenfalls mit den dazugehörigen Anlagen - dem Internationalen Büro zur Weiterleitung an alle ausgewählten Ämter übermittelt.
3. Auf Wunsch eines ausgewählten Amtes wird das Internationale Büro eine Übersetzung des Berichts (jedoch nicht der Anlagen) ins Englische anfertigen und diesem Amt übermitteln.


## 4. ERINNERUNG

Zum Eintritt in die nationale Phase hat der Anmelder vor jedem ausgewählten Amt innerhalb von 30 Monaten ab dem Prioritätsdatum (oder in manchen Ämtern noch später) bestimmte Handlungen (Einreichung von Übersetzungen und Entrichtung nationaler Gebühren) vorzunehmen (Artikel 39 (1)) (siehe auch die durch das Internationale Büro im Formblatt PCT/IB/301 übermittelte Information).

Ist einem ausgewählten Amt eine Übersetzung der internationalen Anmeldung zu übermitteln, so muß diese Übersetzung auch Übersetzungen aller Anlagen zum internationalen vorläufigen Prüfungsbericht enthalten. Es ist Aufgabe des Anmelders, solche Übersetzungen anzufertigen und den betroffenen ausgewählten Ämtern direkt zuzuleiten.

Weitere Einzelheiten zu den maßgebenden Fristen und Erfordernissen der ausgewählten Ämter sind Band II des PCT-Leitfadens für Anmelder zu entnehmen.

Name und Postanschrift der mit der internationalen Prüfung  
beauftragten Behörde

 Europäisches Patentamt  
D-80298 München  
Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d  
Fax: +49 89 2399 - 4465

Bevollmächtigter Bediensteter

Connolly, M

Tel. +49 89 2399-8021



# VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

## PCT

### INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)



Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts <b>NAE19980620PC</b>	<b>WEITERES VORGEHEN</b> siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/IPEA/416)	
Internationales Aktenzeichen <b>PCT/EP99/07208</b>	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) <b>29/09/1999</b>	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) <b>01/10/1998</b>
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK <b>C08L67/02</b>		
Anmelder <b>BASF AKTIENGESELLSCHAFT et al.</b>		

- Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.
- Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 5 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.
  - ☒ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).

Diese Anlagen umfassen insgesamt 2 Blätter.

3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:

- I ☒ Grundlage des Berichts
- II ☐ Priorität
- III ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
- IV ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
- V ☒ Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- VI ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen
- VII ☐ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
- VIII ☒ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags  <b>20/04/2000</b>	Datum der Fertigstellung dieses Berichts  <b>22.12.2000</b>
Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde:   Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter  <b>Kaul-Buchberger, E</b>  Tel. Nr. +49 89 2399 8296 

# INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP99/07208

## I. Grundlage des Berichts

1. Dieser Bericht wurde erstellt auf der Grundlage (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt, weil sie keine Änderungen enthalten.*):

**Beschreibung, Seiten:**

1-21                      ursprüngliche Fassung

**Patentansprüche, Nr.:**

1-5                      eingegangen am                      16/08/2000    mit Schreiben vom    11/08/2000

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- ☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung,                      Seiten:
- ☐ Ansprüche,                      Nr.:
- ☐ Zeichnungen,                      Blatt:

**INTERNATIONALER VORLÄUFIGER  
PRÜFUNGSBERICHT**

Internationales Aktenzeichen PCT/EP99/07208

5. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

*(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen).*

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

**V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung**

**1. Feststellung**

Neuheit (N)	Ja: Ansprüche	1-5
	Nein: Ansprüche	
Erfinderische Tätigkeit (ET)	Ja: Ansprüche	1-5
	Nein: Ansprüche	
Gewerbliche Anwendbarkeit (GA)	Ja: Ansprüche	1-5
	Nein: Ansprüche	

2. Unterlagen und Erklärungen  
**siehe Beiblatt**

**VIII. Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung**

Zur Klarheit der Patentansprüche, der Beschreibung und der Zeichnungen oder zu der Frage, ob die Ansprüche in vollem Umfang durch die Beschreibung gestützt werden, ist folgendes zu bemerken:  
**siehe Beiblatt**

**Zu Punkt V:**

1. Es wird auf die folgenden Dokumente verwiesen:

D1 = EP-A-643104

D2 = EP-A-131202

D3 = BLINNE, G. ET AL.: PLASTVERARBEITER, Bd. 47, Nr. 3, 1996, Seite 82,85  
XP002126700

- 2.1. Obwohl Dokument D1 die anmeldungsgemäßen thermoplastischen Formmassen beschreibt, wird die Verwendung dieser Formmassen für die Herstellung von Formteilen für den Innenraum von Kraftfahrzeugen nicht offenbart.
- 2.2. Dokumente D2 und D3 beschreiben die Verwendung von thermoplastischen Formmassen für die Herstellung von Formteilen für den Innenraum von Kraftfahrzeugen. Diese Formmassen unterscheiden sich aber von den anmeldungsgemäßen.
- 2.3. Der Gegenstand der Ansprüche 1-5 ist somit neu gegenüber der Offenbarung von D1-D3.
- 3.1. Die Beispiele zeigen, daß eine geringe Modifikation der Zusammensetzung der thermoplastischen Formmassen zu einer leichten Verbesserung des Geruchs führt.
- 3.2. Keines der Dokumente D1-D3 gibt einen Hinweis auf diese Verbesserung und deshalb entsprechen die Ansprüche 1-5 den Erfordernissen von Artikel 33(3) PCT.
4. Für alle Ansprüche 1-5 wird industrielle Anwendbarkeit anerkannt.

**Zu Punkt VIII:**

1. Die Angabe der mittleren Teilchengröße erscheint ohne Angabe der Meßmethode und der Bezugsgröße (Vol.-, Zahl- oder Gew.-Mittel) unklar und deshalb entspricht Anspruch 1 nicht den Erfordernissen von Artikel 6 PCT.



**Patentansprüche**

5

1. Verwendung glasfaserverstärkter thermoplastischer Formmassen, enthaltend, bezogen auf die Summe der Komponenten A bis D und gegebenenfalls E und F, die insgesamt 100 Gew.-% ergibt,

10

- a) 10 bis 97 Gew.-% mindestens eines aromatischen Polyesters als Komponente A,

- b) 1 bis 50 Gew.-% mindestens eines teilchenförmigen Pfropfcopolymerisats mit einer Glasübergangstemperatur der Weichphase unterhalb von 0°C und einer mittleren Teilchengröße von 50 bis 1000 nm als Komponente B,

15

- c) 1 bis 50 Gew.-% mindestens eines Copolymerisats aus den Monomeren

- c1) 50 bis 90 Gew.-% mindestens eines vinylaromatischen Monomeren als Komponente C1 und

- c2) 10 bis 25 Gew.-% Acrylnitril und/oder Methacrylnitril

20

- als Komponente C2,

- als Komponente C,

- d) 1 bis 50 Gew.-% Glasfasern als Komponente D,

- e) 0 bis 25 Gew.-% weitere, mit den Komponenten A und/oder C homogenen mischbare oder in diesen dispergierbare, verträgliche Polymere als Komponente E,

25

- f) 0 bis 10 Gew.-% übliche Zusatzstoffe wie UV-Stabilisatoren, Oxidationsverzögerer, Gleit- und Entformungsmittel als Komponente F,

zur Herstellung von Formteilen für den Innenraum von Kraftfahrzeugen.

2. Verwendung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Komponente A besteht aus

- a1) 60 bis 99 Gew.-% Polybutylenterephthalat und  
a2) 1 bis 40 Gew.-% Polyethylenterephthalat.
3. Verwendung nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß die Komponente B  
5 besteht aus
- b1) 50 bis 90 Gew.-% einer teilchenförmigen Pfropfgrundlage B1 aus den Monomeren
- b1.1) 75 bis 99,9 Gew.-% eines C<sub>1</sub>-C<sub>10</sub>-Alkylesters der Acrylsäure als  
Komponente B11,
- 10 b1.2) 0,1 bis 10 Gew.-% mindestens eines polyfunktionellen Monomeren mit  
mindestens zwei olefinischen, nicht konjugierten Doppelbindungen als  
Komponente B12 und
- b1.3) 0 bis 24,9 Gew.-% eines oder mehrerer weiterer copolymerisierbarer  
Monomere als Komponente B13,
- und
- 15 b2) 10 bis 50 Gew.-% einer Pfropfauflage B2 aus den Monomeren
- b2.1) 50 bis 90 Gew.-% eines vinylaromatischen Monomeren als Komponente  
B21 und
- b2.2) 10 bis 50 Gew.-% Acrylnitril und/oder Methacrylnitril als Komponente  
B22.
- 20
4. Verwendung nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß die  
Komponenten B21 und/oder C1 unsubstituiertes Styrol sind.
5. Verwendung nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß die  
25 Komponente B1 aus den Komponenten B11 und B12 besteht.

We claim:

1. A glass-fiber-reinforced thermoplastic molding composition comprising, based on the total of components A to D and, if desired, E and F, which in total give 100% by weight,
  - a) as component A, from 10 to 97% by weight of at least one aromatic polyester,
  - b) as component B, from 1 to 50% by weight of at least one particulate graft copolymer whose soft phase has a glass transition temperature below 0°C and whose median particle size is from 50 to 1000 nm,
  - c) as component C, from 1 to 50% by weight of at least one copolymer made from the following monomers
    - c1) a component C1, from 50 to 90% by weight of at least one vinylaromatic monomer, and
    - c2) as component C2, from 10 to 25% by weight of acrylonitrile and/or methacrylonitrile,
  - d) as component D, from 1 to 50% by weight of glass fibers,
  - e) as component E, from 0 to 25% by weight of other compatible polymers homogeneously miscible with components A and/or C or dispersible in these, and
  - f) as component F, from 0 to 10% by weight of conventional additives, such as UV stabilizers,

oxidation retarders, lubricants and mold-release agents.

2. A molding composition as claimed in claim 1,  
5 wherein component A is composed of

a1) from 60 to 99% by weight of polybutylene  
terephthalate and

10 a2) from 1 to 40% by weight of polyethylene  
terephthalate.

3. A molding composition as claimed in claim 1 or 2,  
15 wherein component B is composed of

b1) from 50 to 90% by weight of a particulate  
graft base B1 made from the following  
monomers

20 b1.1) as component B11, from 75 to 99.9% by  
weight of a C<sub>1</sub>-C<sub>10</sub>-alkyl acrylate,

25 b1.2) as component B12, from 0.1 to 10% by  
weight of at least one polyfunctional  
monomer having at least two non-  
conjugated olefinic double bonds, and

30 b1.3) as component B13, from 0 to 24.9% by  
weight of one or more other  
copolymerizable monomers,

and

35 b2) from 10 to 50% by weight of a graft B2 made  
from the following monomers

b2.1) as component B21, from 50 to 90% by  
weight of a vinylaromatic monomer, and

b2.2) as component B22, from 10 to 50% by weight of acrylonitrile and/or methacrylonitrile.

- 5    4.    A molding composition as claimed in any one of  
claims 1 to 3, wherein components B21 and/or C1  
are unsubstituted styrene.
- 10    5.    A molding composition as claimed in any one of  
claims 1 to 4, wherein component B1 is composed of  
components B11 and B12.
- 15    6.    A molding composition as claimed in any one of  
claims 1 to 5, wherein component B is composed of  
from 10 to 90% by weight of a fine-particle graft  
copolymer whose median particle size is from 50 to  
200 nm and from 10 to 90% by weight of a coarse-  
particle graft copolymer whose median particle  
size is from 250 to 1000 nm.
- 20    7.    A molding made from a molding composition as  
defined in any one of claims 1 to 6.
- 25    8.    A molding as claimed in claim 7 having one or more  
of the following features:
- PV 3341 carbon emission < 40  $\mu\text{g}$  of carbon/g
  - a grade better than 4 as the result of the DIN  
30    50 011/PV 3900 odor test
  - Vicat B softening point > 145°C
  - ISO 179/1eU impact strength after 1000 h of  
35    continuous heat-aging at 130°C >  $\text{kJ/m}^2$  and
  - DIN 53457 elongation at break after 1000 h of  
continuous heat-aging at 130°C > 2%.

9. A molding as claimed in claim 8 for motor vehicle interiors.
- 5 10. The use of molding compositions as defined in any one of claims 1 to 6 for producing moldings for motor vehicle interiors.
- 10 11. The use of molding compositions as defined in any one of claims 1 to 6 for producing moldings for motor vehicle interiors, encompassing the step of thermoforming, extruding, injection molding, calendering, blow molding, compression molding, press sintering, or sintering of the molding compositions.